

10/710969
03/07/05



⑯ BUNDESREPUBLIK
DEUTSCHLAND



DEUTSCHES
PATENT- UND
MARKENAMT

⑯ Offenlegungsschrift
⑯ DE 100 03 090 A 1

⑮ Int. Cl. 7:
B 01 J 35/04
B 01 D 53/56
B 01 D 53/86
B 01 D 53/94
F 01 N 3/28

⑯ Aktenzeichen: 100 03 090.4
⑯ Anmeldetag: 25. 1. 2000
⑯ Offenlegungstag: 5. 7. 2001

Mit Einverständnis des Anmelders offengelegte Anmeldung gemäß § 31 Abs. 2 Ziffer 1 PatG

⑰ Anmelder:
Siemens AG, 80333 München, DE

⑰ Erfinder:
Hums, Erich, Dipl.-Chem. Dr., 91093 Heßdorf, DE

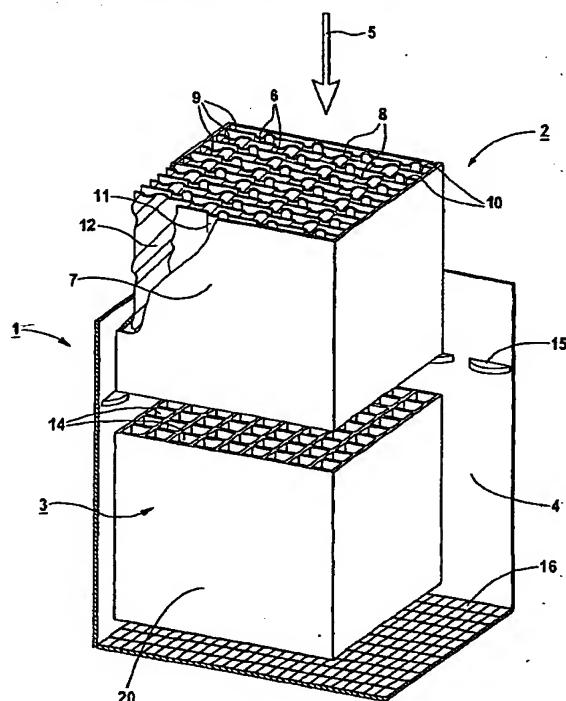
⑯ Entgegenhaltungen:
DE 196 47 400 A1
EP 07 44 207 A1

Die folgenden Angaben sind den vom Anmelder eingereichten Unterlagen entnommen

Prüfungsantrag gem. § 44 PatG ist gestellt

⑯ Durchströmmbare Katalysatoranordnung sowie Verwendung der Katalysatoranordnung

⑯ Die Erfindung betrifft eine durchströmmbare Katalysatoranordnung (1, 17) mit einem ersten und einem zweiten Katalysatorkörper (2; 3, 18), wobei der erste Katalysatorkörper (2) eine Anzahl von mit einer Aktivmasse beschichtete Platten (6) umfaßt, in die jeweils eine in einer Hauptrichtung (11, 12) verlaufende und sich periodisch wiederholende Struktur (8) eingebracht ist. Die Platten (6) sind derart gestapelt, dass sich die Hauptrichtungen der Strukturen (8) mindestens zweier benachbarter Platten (6) schneiden. Die Katalysatoranordnung (1, 17) eignet sich insbesondere für die Katalyse einer Reaktion von wenigstens zwei Reaktanten, wobei mindestens ein Reaktant inhomogen verteilt in einem gasförmigen und flüssigen Medium vorliegt.



DE 100 03 090 A 1

Beschreibung

Die Erfindung betrifft eine durchströmbarer Katalysatoranordnung mit einem ersten Katalysatorkörper und mit einem diesem nachgeschalteten zweiten Katalysatorkörper sowie die Verwendung der Katalysatoranordnung. Die Erfindung eignet sich insbesondere für die Katalyse einer Reaktion von wenigstens zwei Reaktanten, wobei mindestens ein Reaktant inhomogen verteilt in einem gasförmigen oder flüssigen Medium vorliegt.

Eine solche inhomogene Verteilung liegt beispielsweise dann vor, wenn ein für die zu katalysierende Reaktion erforderlicher Reaktant dem Medium erst beigemengt werden muß. Dies ist beispielsweise bei dem bekannten Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion zur Minderung von Stickoxiden im Abgas einer Verbrennungsanlage der Fall. Hierbei wird dem Abgas zusätzlich ein Reduktionsmittel, wie beispielsweise Ammoniak, beigegeben. Das Reduktionsmittel reagiert an einem sogenannten DeNOx-Katalysator auch in Anwesenheit von Sauerstoff mit im Abgas enthaltenen Stickoxiden zu Stickstoff und Wasser. Die Stickoxide werden effektiv zu unschädlichem Stickstoff umgesetzt. Anstelle von Ammoniak kann auch eine Ammoniak freisetzende Substanz, wie beispielsweise Harnstoff, dem Abgas beigemengt werden.

Ein für die Katalyse einer Reaktion von Reaktanten mit inhomogener Verteilung geeigneter Katalysatorkörper ist beispielsweise aus der WO 94/26411 A1 bekannt. Dort wird unter anderem ein Plattenkatalysator vorgeschlagen, bei welchem die einzelnen Platten zur Beabstandung voneinander mit einer sich entlang einer Hauptrichtung erstreckenden und sich periodisch wiederholenden Struktur versehen sind. Diese sind derart in einem Stapel angeordnet, dass sich die Hauptrichtungen der Strukturen unmittelbar benachbarter Platten unter einem Winkel schneiden. Durch die gekreuzte Anordnung der Platten ist der Reaktionsraum des Plattenkatalysators nicht durch benachbarte Strukturen begrenzt, sondern erstreckt sich über die gesamte Querschnittsfläche einer Platte. Der Reaktionsraum ist begrenzt durch zwei benachbarte Platten sowie durch die Seitenflächen eines eventuell vorhandenen Halterahmens oder Elementkastens, in welchem die Platten gestapelt sind. Durch die in unterschiedliche Hauptrichtungen verlaufenden Strukturen benachbarter Platten wird das durchströmende Medium oder Strömungsmedium zumindest teilweise von der Hauptströmungsrichtung abgelenkt. Es wird eine gute Durchmischung der Komponenten des Strömungsmediums sowohl lokal als auch über den gesamten Reaktionsraum erzielt.

Nachteiligerweise zeigt ein derartiger, für eine gute Durchmischung der Komponenten oder Reaktanten im Strömungsmedium konzipierter Plattenkatalysator jedoch gegenüber einem herkömmlichen Plattenkatalysator mit parallel ausgerichteten Platten oder Strukturen einen höheren Druckverlust. Der Druckverlust hängt u. a. von dem Winkel ab, welchen die Hauptrichtungen der "gedrehten" Strukturen der Platten mit der Hauptströmungsrichtung des Strömungsmediums bilden. Ein Plattenkatalysator gemäß der WO 94/26411 A1 neigt daher zur Verstopfung durch im Strömungsmedium enthaltene Partikel, wie z. B. Ruß- oder Aschepartikel im Abgas von Verbrennungsanlagen, da sich diese aufgrund der niedrigen Strömungsgeschwindigkeiten leicht absetzen können. Aus diesen Gründen werden trotz des guten katalytischen Umsatzes derartige Plattenkatalysatoren heute nicht kommerziell eingesetzt.

Der Erfahrung liegt daher die Aufgabe zugrunde, eine Katalysatoranordnung anzugeben, die einen akzeptierbaren Druckverlust und eine hohe Umsatzrate zeigt. Weiter ist es Aufgabe der Erfindung, eine Verwendung dieser Katalysa-

toranordnung anzugeben.

Die erstgenannte Aufgabe wird erfundungsgemäß gelöst durch eine Katalysatoranordnung mit einem ersten Katalysatorkörper und mit einem dem ersten Katalysatorkörper

5 nachgeschalteten zweiten Katalysatorkörper, wobei der erste Katalysatorkörper eine Anzahl von mit einer Aktivmasse beschichteten Platten umfaßt, in welche Platten jeweils eine in einer jeweiligen Hauptrichtung verlaufende und sich periodisch wiederholende Struktur eingebracht ist, und welche 10 Platten in einem Stapel derart gestapelt sind, daß sich die Hauptrichtungen der Strukturen mindestens zweier benachbarter Platten schneiden, und wobei der zweite Katalysatorkörper eine Anzahl von parallel verlaufenden Strömungskanälen umfaßt.

15 Die Erfindung geht dabei von der Überlegung aus, dass bei einem herkömmlichen aus parallel ausgerichteten und durch Strukturen voneinander beabstandeten Platten aufgebauten Plattenkatalysator oder einem als durchströmbarer Wabenkörper mit einer Anzahl von parallelen Längskanälen 20 ausgebildeten Wabenkatalysator in der Regel aufgrund fehlenden Bauraums zwischen der Einbringstelle für den für die Katalyse erforderlichen Reaktanten in das Strömungsmedium und dem Katalysatorkörper ein sogenannter statischer Mischer eingebaut wird. Dieser statische Mischer 25 weist eine Anzahl von sich quer zur Strömungsrichtung erstreckenden Mischelementen auf, die zu einer Turbulenzhöhung im Medium und damit zu einer Durchmischung der Komponenten des Mediums führen.

Erkanntermaßen kann nun ein Katalysatorkörper mit einer Anzahl von Platten, deren Strukturen gegenüber den Strukturen der übrigen Platten gedreht sind, den bislang verwendeten statischen Mischer ersetzen.

Die Katalysatoranordnung weist gegenüber einer Anordnung mit einem statischen Mischer und mit einem dem statischen Mischer nachgeschalteten Katalysatorkörper herkömmlicher Bauart einen vergleichbaren Druckverlust bei einem aufgrund der katalytischen Aktivität des als Mischer verwendeten ersten Katalysatorkörpers erhöhten katalytischen Umsatz auf. Der zweite Katalysatorkörper ist vorteilhafterweise ein durchströmbarer Waben- oder Plattenkatalysator.

Vorteilhafterweise sind die Platten im ersten Katalysatorkörper in zwei Substapeln derart gestapelt, daß sich die Strukturen der Platten eines jeden Substapels jeweils in die gleiche Hauptrichtung erstrecken.

Als eine vorteilhafte Anordnung der Platten hat es sich dabei gezeigt, wenn die Hauptrichtung der Strukturen der Platten des einen Substapels parallel zur Hauptdurchströmungsrichtung des Strömungsmediums ausgerichtet ist. Bei einer solchen Ausgestaltung des ersten Katalysatorkörpers wird eine gute Durchmischung des Strömungsmediums bei relativ kleinem Druckverlust erzielt.

Hinsichtlich eines günstigen Herstellungsverfahrens ist es vorteilhaft, wenn in alle Platten die gleiche Struktur eingebracht ist. Das Einbringen der Struktur geschieht im Falle eines metallischen Trägers der Platte beispielsweise durch Stanzen vor oder nach dem Aufbringen der katalytischen Beschichtung. Der metallische Träger kann beispielsweise ein Streckmetall oder ein Metallgewebe sein. Insbesondere 55 kann Stahl zum Einsatz kommen. Alternativ kann als Trägermaterial auch Keramik verwendet werden.

Prinzipiell eignet sich als Struktur der Platten jede periodische Struktur wie eine Sinuswelle oder ein Sägezahn- oder Dreiecksverlauf. Von Vorteil ist es jedoch, wenn die Struktur eine Sicke ist. Dies erlaubt eine gute Beabstandung der Platten untereinander, wobei gleichzeitig die durch Sikken begrenzten Reaktionsräume hinsichtlich der Durchmischung des Strömungsmediums gut geeignet sind.

In einer vorteilhaften Ausgestaltung sind beide Katalysatorkörper in einem gemeinsamen Gehäuse angeordnet. Für den Einsatz beispielsweise in Abgaskanälen von Großkraftwerken, welche Kanäle einen großen Querschnitt aufweisen, können auf diese Weise ganze Lagen, bestehend jeweils aus ersten bzw. zweiten Katalysatorkörpern, in einem Gehäuse zusammengefaßt werden. Das Gehäuse füllt dann den gesamten Querschnitt aus; man spricht von sogenannten Katalysatormodulen.

Die zweitgenannte Aufgabe wird erfundungsgemäß durch die Verwendung der Katalysatoranordnung zum Abbau von Stickoxiden in Abgasen von Verbrennungsanlagen nach dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion (SCR-Verfahren) gelöst.

Bei diesem Verfahren werden auch in Anwesenheit von Sauerstoff Stickoxide mittels eines Reduktionsmittels am Katalysatorkörper zu Stickstoff und Wasser umgesetzt. Als Reduktionsmittel können Kohlenwasserstoffe oder sonstige reduzierende Verbindungen eingesetzt werden. Insbesondere hat sich der Einsatz von Ammoniak als Reduktionsmittel durchgesetzt. Hierzu wird aufgrund der einfacheren Handhabung eine wässrige Harnstofflösung in das zu behandelnde Abgas eingebracht. Aufgrund der relativ hohen Temperaturen im Abgas zersetzt sich Harnstoff in Ammoniak.

Das Verfahren kann vorteilhaft in Abgasen von einem mit fossilem Brennstoff betriebenen Großkraftwerk, wie z. B. einem Kohlekraftwerk oder einer Müllverbrennungsanlage, und insbesondere auch in Abgasen eines Verbrennungsmotors, wie z. B. einem Dieselmotor oder einem Magermotor, eingesetzt werden.

Nachfolgend werden Ausführungsbeispiele der Erfindung anhand einer Zeichnung näher erläutert. Darin zeigen:

Fig. 1 in teilweise aufgeschnittener Darstellung perspektivisch eine Katalysatoranordnung mit einem als Wabenkatalysator ausgebildeten zweiten Katalysatorkörper, und

Fig. 2 in einer Darstellung gemäß Fig. 1 eine Katalysatoranordnung mit einem als Plattenkatalysator ausgebildeten zweiten Katalysatorkörper.

Gleiche Teile sind in beiden Figuren mit den gleichen Bezugssymbolen versehen.

In Fig. 1 ist perspektivisch und in teilweise aufgebrochener Darstellung eine durchströmmbare Katalysatoranordnung 1 mit einem ersten Katalysatorkörper 2 und mit einem zweiten Katalysatorkörper 3 gezeigt. Beide Katalysatorkörper 2, 3 sind in einem gemeinsamen Gehäuse 4 gehalten. Das Gehäuse 4 ist derart gestaltet, daß es eine Vielzahl der ersten und zweiten Katalysatorkörper 2 bzw. 3 jeweils in einer Ebene nebeneinander aufnehmen kann. Bei einem derartigen, mit Katalysatorkörpern bestückten Gehäuse 4 spricht man auch von einem sogenannten Katalysatormodul, welches in einen Strömungskanal plaziert wird. Die Abmessungen des Gehäuses 4 sind dabei spezifisch auf den Querschnitt des Strömungskanals zugeschnitten.

Das Gehäuse 4 sowie die Katalysatorkörper 2 und 3 werden von dem zu behandelnden Medium in der gezeigten Hauptströmungsrichtung 5 durchströmt. Dabei ist im Strömungskanal – in Hauptströmungsrichtung betrachtet – vor dem ersten Katalysatorkörper 2 eine Einbringstelle für den für die katalytische Reaktion notwendigen Reaktanten angeordnet. Im Falle der Anwendung der Katalysatoranordnung 1 zur Reduktion von Stickoxiden nach dem SCR-Verfahren im Abgas einer Verbrennungsanlage kann dies beispielsweise eine Eindüsvorrichtung für eine wässrige Harnstofflösung sein.

Der erste Katalysatorkörper 1 umfaßt eine Anzahl von Platten 6, die in einem Elementkasten 7 gestapelt sind. Die rechteckig ausgeführten Platten 6 sind jeweils aus einem Träger aus Metall, Kunststoff oder Keramik gefertigt, der

beidseitig mit einer katalytisch aktiven Aktivmasse beschichtet ist. Aus Gründen der Übersichtlichkeit ist weder der Träger noch die Aktivmasse in der Figur dargestellt.

Für die Anwendung der Katalysatoranordnung 1 zur Reduzierung von Stickoxiden gemäß dem SCR-Verfahren umfaßt die Aktivmasse als Hauptbestandteil Titandioxid sowie Beimengungen an Vanadiumpentoxid, Wolframtrioxid und/oder Molybdäntrioxid. Die Platten 6 sind jeweils mit einer in eine Hauptrichtung verlaufende und sich periodisch wiederholende Struktur 8 in Form einer Sicke versehen. Die Struktur 8 kann dabei je nach Material des Trägers in den fertigen Träger eingestanzt oder bei Formung des Trägers ausgebildet werden.

Der Elementkasten 7 ist ein an den Stirnflächen offener Quader aus Metall, insbesondere aus Edelstahl. Die zu den Plattenebenen senkrechten Seitenflächen des Elementkastens 7 sind innen mit Führungsschienen zur Befestigung und zum einfachen Einbau der Platten 6 versehen. Die Stapelung der Platten 6 ist unterteilt in einen ersten Substapel 9 und in einen zweiten Substapel 10, wobei die Strukturen 8 aller Platten jeweils eines Substapels 9 bzw. 10 entlang jeweils einer Hauptrichtung verlaufen. Dabei verläuft die Hauptrichtung 11 der Strukturen der Platten des ersten Substapels 9 parallel zur Hauptströmungsrichtung 5. Die Hauptrichtung der Strukturen 8 der Platten des zweiten Substapels 10 schließt mit der Hauptströmungsrichtung 5 einen Winkel ein.

Die Substapel 9 und 10 sind so angeordnet, daß sich die Hauptrichtungen 11, 12 der Strukturen 8 jeweils benachbarter Platten schneiden. Auf diese Weise wird zwischen benachbarten Platten ein Reaktionsraum geschaffen, der nicht durch die Strukturen 8 begrenzt ist, sondern sich über den gesamten Querschnitt der Platten 6 erstreckt. Durch die gegenüber der Hauptströmungsrichtung 5 schräg verlaufenden Strukturen 8 der Platten des zweiten Substapels 10 wird ein Teil des Mediums aus der Hauptströmungsrichtung 5 abgelenkt. Dies führt zu einer Durchmischung des Mediums und damit zu einer homogenen Verteilung des Reaktanten in dem Medium.

Der zweite Katalysatorkörper 3 ist als ein Wabenkörper mit einer Anzahl von parallelen Strömungskanälen 14 ausgebildet. Der Wabenkörper besteht vollständig aus einer katalytisch aktiven Masse oder Aktivmasse und ist als Vollcxtrudat hergestellt. Für die Anwendung der Katalysatoranordnung 1 zur Reduzierung von Stickoxiden gemäß dem SCR-Verfahren umfaßt die Aktivmasse wiederum als Hauptbestandteil Titandioxid sowie Beimengungen an Vanadiumpentoxid, Wolframtrioxid und/oder Molybdäntrioxid.

In dem Gehäuse 4 sind eine Anzahl von Halteelementen 15 angeordnet, auf welchen die ersten Katalysatorkörper 2 gehalten sind. Die Unterseite des Gehäuses 4 ist mit einem durchströmmbaren Gitter 16 zum Schutz der Anlage vor Teilen der Katalysatoranordnung 1 versehen.

In Fig. 2 ist perspektivisch und in teilweise aufgebrochener Darstellung eine durchströmmbare Katalysatoranordnung 17 mit einem ersten Katalysatorkörper 2 und einem zweiten Katalysatorkörper 18 gezeigt. Gegenüber Fig. 1 unterscheidet sich die in Fig. 2 gezeigte Katalysatoranordnung 17 lediglich durch den Aufbau des zweiten Katalysatorkörpers 18.

Der zweite Katalysatorkörper 18 ist ähnlich dem ersten Katalysatorkörper 2 aufgebaut. Er umfaßt ebenfalls eine Anzahl von Platten 19, die in einem Elementkasten 20 gestapelt sind. Im Unterschied zum Katalysatorkörper 2 weisen jedoch die Hauptrichtungen der Strukturen 21 aller Platten des Katalysatorkörpers 18 in eine einzige Richtung, nämlich parallel zur II Hauptströmungsrichtung 5 des durchströmen-

den Mediums. Dies entspricht dem Aufbau eines herkömmlichen Plattenkatalysators. Dabei sind die parallel gestapelten Platten 19 durch die in die Platten 19 eingebrachten Strukturen 21 beabstandet. Zwischen zwei benachbarten Platten 19 werden eine Vielzahl von einzelnen Reaktionsräumen 22 geschaffen, die jeweils durch zwei Strukturen benachbarter Platten sowie durch die Platten 19 selbst gebildet sind.

5

Patentansprüche

10

1. Durchströmbarer Katalysatoranordnung (1, 17) mit einem ersten Katalysatorkörper (2) und mit einem diesem nachgeschalteten zweiten Katalysatorkörper (3, 18), wobei der erste Katalysatorkörper (2) eine Anzahl von mit einer Aktivmasse beschichteten Platten (6) umfaßt, in welche Platten (6) jeweils eine in einer jeweiligen Hauptrichtung (11, 12) verlaufende und sich periodisch wiederholende Struktur (8) eingebracht ist, und welche Platten (6) in einem Stapel derart gestapelt sind, daß sich die Hauptrichtungen (11, 12) der Strukturen (8) mindestens zweier benachbarter Platten (6) schneiden, und wobei der zweite Katalysatorkörper (3, 18) eine Anzahl von parallel verlaufenden Strömungskanälen (14, 22) umfaßt. 15
2. Katalysatoranordnung (1, 17) nach Anspruch 1, wobei der zweite Katalysatorkörper (3) als ein durchströmbarer Wabenkörper ausgebildet ist. 20
3. Katalysatoranordnung (1, 17) nach Anspruch 1, wobei der zweite Katalysatorkörper (18) als ein durchströmbarer Plattenkörper ausgebildet ist. 30
4. Katalysatoranordnung (1, 17) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Platten (6) in zwei Substapeln (9, 10) derart gestapelt sind, daß sich die Strukturen (8) der Platten (6) eines jeden Substapels (9, 10) jeweils in eine gleiche Hauptrichtung (11, 12) erstrecken. 35
5. Katalysatoranordnung (1, 17) nach Anspruch 4, wobei die Hauptrichtung (11) der Strukturen (8) der Platten (6) des einen Substapels (9) parallel zur Hauptdurchströmungsrichtung (5) ausgerichtet sind. 40
6. Katalysatoranordnung (1, 17) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei in alle Platten (6) die gleiche Struktur (8) eingebracht ist. 45
7. Katalysatoranordnung (1, 17) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei die Struktur (8) eine Sicke ist. 50
8. Katalysatoranordnung (1, 17) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, wobei der erste (2) und der zweite Katalysatorkörper (3, 18) in einem gemeinsamen Gehäuse (4) angeordnet sind. 55
9. Verwendung der Katalysatoranordnung (1, 17) nach einem der vorhergehenden Ansprüche zum Abbau von Stickoxiden gemäß dem Verfahren der selektiven katalytischen Reduktion.

Hierzu 2 Seite(n) Zeichnungen

60

65

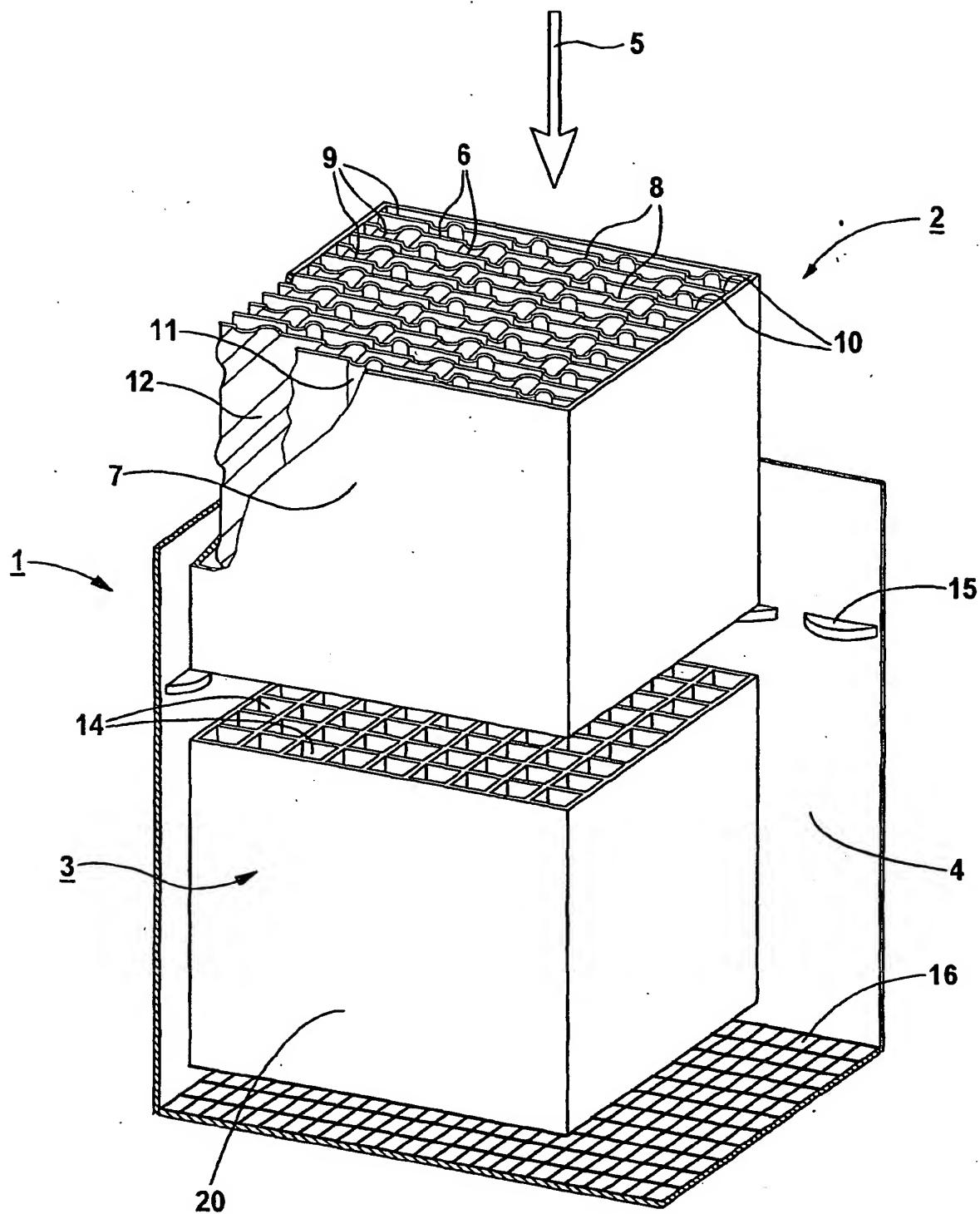


FIG 1

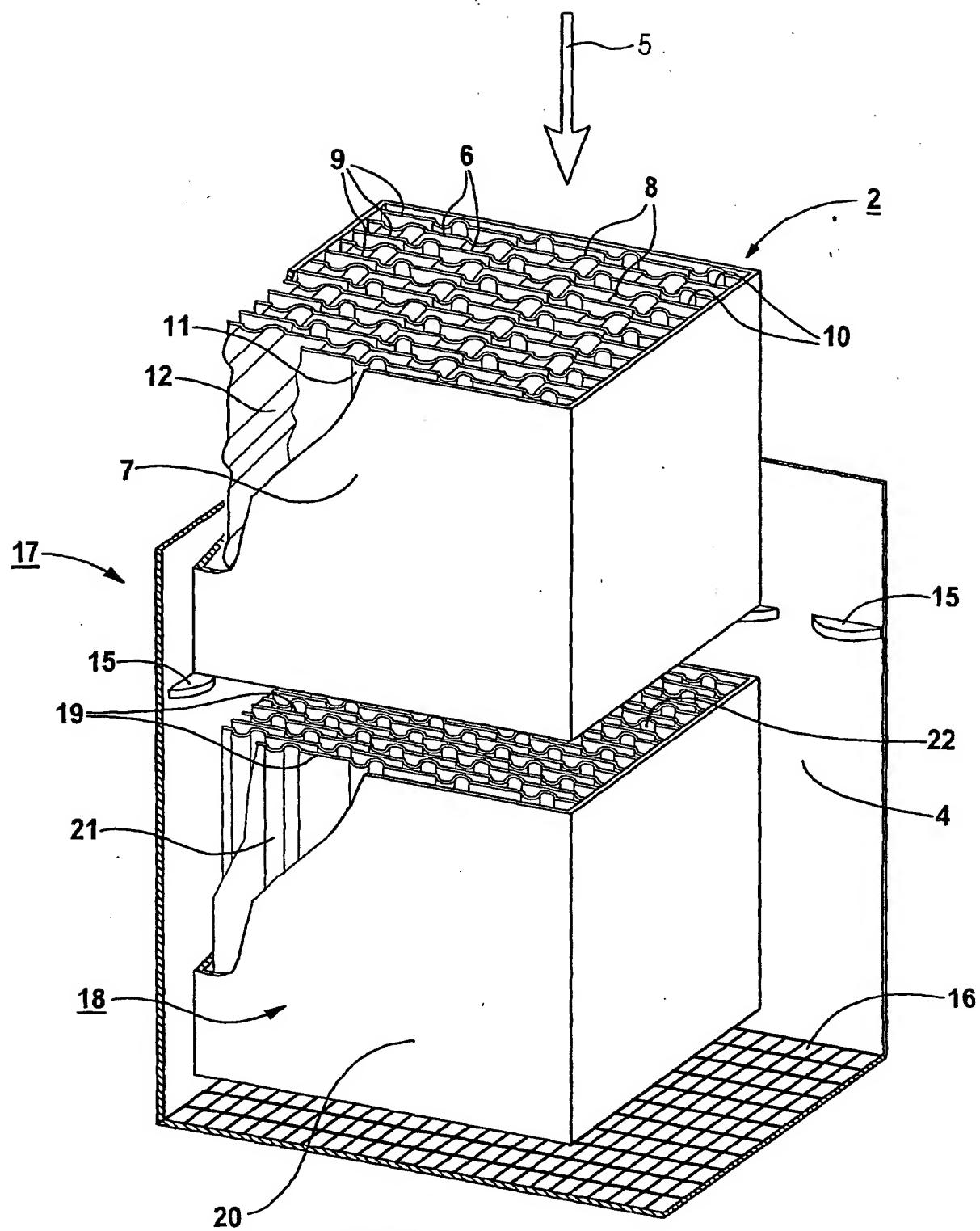


FIG 2